(9) 日本国特許庁 (JP)

⑩特許出願公開

⑩公開特許公報(A)

昭59-64733

⑤Int. Cl.³C 22 C 19/07

/07

38/10

1/04

識別記号

庁内整理番号 7821-4K 7147-4K

7354-5E

毯公開 昭和59年(1984) 4 月12日

発明の数 1 審査請求 未請求

(全 8 頁)

匈永久磁石

H 01 F

3

②特

願 昭57—166663

❷出

願 昭57(1982)9月27日

⑩発 明·者

佐川眞人

大阪府三島郡島本町江川2丁目 一15—17住友特殊金属株式会社

山崎製作所内

⑩発 明 者 藤村節夫

大阪府三島郡島本町江川2丁目

-15-17住友特殊金属株式会社 山崎製作所内

⑫発 明 者 松浦裕

大阪府三島郡島本町江川2丁目 -15-17住友特殊金属株式会社 山崎製作所内

⑪出 願 人 住友特殊金属株式会社

大阪市東区北浜5丁目22番地

個代 理 人 弁理士 加藤朝道

明. 訓 . 許

1. 発明の名称

永久磁石

2. 特許請求の範囲

3. 発明の詳細な説明

本発明はFe・B・B系永久磁石においてその温度特性の改良に捌する。本発明において比較希上額元素を示す記号として用いる。

永久銀石材料は一般家庭の各類観気製品から、 大型コンピュータの周辺端末機まで、幅広い分野 で使われるきわめて重要な電気・電子材料の一つ である。近年の電気、電子機器の小型化、高効器 化の要求にともない、永久磁石材料はますます高 性能化が求められるようになつた。

現在の代表的な永久與石材料はアルニコ、ハー

ドフェライトおよび希土筋コバルト磁石である。 最近のコバルトの原料事情の不安定化にともない、 コバルトを20~30重量を含むアルニコ磁石の 需要は減り、鉄の酸化物を主成分とする安価なハードでは、一方、 布土額コバルト 磁石は対したので、 なつた。一方、 布土額コバルト 確立はないになった。一方、 布土額コバルト 確立はないであるようにないない。 ち0~65 重量をもむりえ、 希土額 放大 変 器 低にあまり合すれていない。 もなが、他の磁石に比べて、 付加価値の器 い 確 気回 既に多く使われるよりになった。

本発明者は、先に高価な Sm や Co を含まない新しい高性能永久磁石として Pe・B・R系の磁気異方性螺結体から成る永久磁石を見出し本額と同一出額人により出類された「特額間 57-145072)。
この Pe・B・R系永久磁石は Co を含まず、Rとして No や Pr を中心とする預額的に豊富な軽布出剤を用い、 Pe を主成分として 2.5 MGOe の極めて高いエネルギー組を派すことができることを派した点で使れたものである。この Pe・B・R系永久維石

時開昭59-64733(2)

は従来のアルニコ酰石や希上類コバルト磁石に比して、より低いコストで高い確性を有する、関ちより高いコストパーフォーマンスを与えるのでそれ自体として大きな有用性を有する。

このどc・リ・ル系永久は石のキュリー点は、特 朝昭 5 7 - 1 4 5 0 7 2 に開示の通り一般に 300 で前後、最高 3 7 0 でである。このキュリー点は、 従来のアルニコ系ないしお・Co 系の永久磁石の約 600でのキュリー点と比べてかなり低いものである。かくて、 Pe・B・ル系永久磁石は、従来のア ルニコ系や N・Co 系磁石に比し磁気特性の温度依存 性が大であり、高温においては磁気特性の低下が 生ずる。

本語明は、上述の如く、Fe·B·R系磁石の温度特性を改良することを目的とする。本語明によればFe·I·R系磁石の主成分たるFeの一部をCoで放換することにより、生成合金のキュリー点を上昇せしめ、温度特性を改善することができる。本発明省等の研究の結果によれば、前述のFe·II·R磁石は約100で以上の温度で使用するとその

ても有利であり、磁気特性の上からもさらに優れ たものが得られる。

一般に、Fc合金への、Coの総加の際Co添加量の 別人に従いキュリー点(Tc)が上昇するものと下降 するものと胸方が認められている。そのためFc をCoで超換することは、一般的には複雑な結果を 生米しその類果の予測は困難である。例をはHFe。 化合物のFeをCoで凝擬して行くとCo類の周大に 併いTcはまず上昇するがFeを1/2 選換したは(Feu.6 Coo.5) 3 付近で微大に渡しその後低下してしまう。 またFc2 B合金の場合には、Fc の Co による環境に よりTc は単調に低下する。

本発明による。Fe・B・R系におけるFeのCoによる解検においては、第1図に示す通り、Coに換性の増大に併いTcは徐々に増大することが明らかとなつた。このFe・B・R系合金においては、Rの短額によらず同様な傾向が確認される。Coの致換費はわずかでもTc増大に有効であり、第1図として例示する系(77・x)Fe・xCo・BB・15Ndにおいて明らかな通り、xの調整により

福度特性が劣化するため、約70℃以下の通常の 福度福班で使用することが適当であることが判明 した。そのため、各種の実験及び統制の結果、Fc のCoによる気強がFc・B・R系永久磁石の温度特 性の改管に有効であることを見出したものである。

即ち、本発明によれば、原子百分比において比 8~30%(但し比はYを包含する命上期元器の少くとも一般)、B2~28%、残部ドe及び不可 避の不執物から或る破気異方性糖結体永久破石に おいて、FeをCoにより電換することにより合金 組成中にCoを50%以下(原子百分比)含有せし めることにより温度特性を契質的に従来のアルニ コ、比Co采送石と向等程度に改善するものである。

本発明においてはCoを含有することによりFe・B・L系永久磁石の温度等低を改配するしさらにその他の利点を保持する。即ち、指土期元器にとして負額的に豊富なNo・Pr などの経者上期を用いて高い磁気特性を発現する。このため、本発明のCo 置換Fe・B・L系磁石は、従来のL-Co 磁でと比較すると、資源的、価格的いずれの点におい

400~800℃の任意のTcをもつ合金が得られる、本発明のCo 懒惰Fc · B· H 系永久頤石のB, B, 及び(Fc + Co)合撰の組成は、指本的にFc · B· B 系合金(Coを含まない系)の場合と同様である。即ち(以下多は合金中、原子百分比を示す)、保証力Hc > 1 K Ocを満たすためBは28以上とし、ハードフエライトの残留磁架密設Br約4 KG 以上とするためにBは28 多以下とする。Bは、保磁力1 K Oc以上とするためと8 以上とするためと8 以上を設てあり、また燃え易く工築的収扱、製造上の関連のため(かつまたご価であるため)、30 8以下とする(第2 聚参照)。

Rとしては投源的に豊富な職者上期を用いるととができ、必ずしも Smを必要とせず或いは Sm を主体とする必要もないので原料が安価であり、きわめて有用である。

本発明の永久磁石に用いる希上研元器ははYを包含し、軽希上網及び具希上類を包含する希上新元素であり、そのうち一種以上を用いる。即ちてのルとしては、Nd、Pr、La、Ce、Tb、Dy、Do、

時開昭59- 64733(3)

Er、Eu、Sm、Gd、Pm、Tm、Yo、Lu 及びYが包含される。Rとしては、軽新上額をもつて足り、特にNo、Prが好ましい。また面倒れのうち一種をもつて足りるが、突用上は二種以上の混合物(ミンシュメタル、シシム等)を入手上の便宜等の理由により用いることができる。なお、この比性観番上額元器でなくともよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可能な不純物を含有するもので遵文えない。

り(水ウ器)としては、純ポロン又はフェロボロンを用いることができ、不純物としてAL、Si、C等を含むものも用いることができる。

本発明の永久城石体は、既述の 8 ~ 3 0 多 K.
2 ~ 2 8 多 B. Co 5 0 多以下、改部 Fe (原子百分率) において、保磁力 Hc ≥ 1 K Oe. 残留磁束密度 Br > 4 K O の磁気特性を示し、最大エネルギー 報(BH) max はハートフェライト (~ 4 M O Oe 程度) と同等以上となる。

軽希上類をルの主成分(即ち全比中軽希上類 50 原子多以上)とし、12~20 % H、4~24 %

この災施例は水発明をとれらに限定するものでは ない。。

第1 図に代表例として 7 7 Fc・8 B・1 5 Nd の Fe の一部 を Co (x) で故譲した系、 (77-x) Fc・x Co 8 B・1 5 Nd の x を 0 ~ 7 7 に変化させた場合の、キュリー 点 Tcの変化を示す。この試料はつぎの工程により作製した。

- (1) 含金を高均数裕解し、水冷鋼的機化的激、出 光原料はFcとして純度99.9多の保解鉄、 B 19.4% を含有し級部がFeとAL、Si、C の不納物からなる フエロボロン合金、おとして純度99.7多以上(不 純物は主として他の称上類金属)を使用、Coは 純度99.9多の低解Coを使用した。
- (3) 磁界 (10KOc)中配河、成形 (1.5 T/cml にて 加圧)
- (4) 「鋸約1000~1200℃1時間Ar中端結次放為、 蛯転体から約0.19のブロンクを別出し、VSM

B. 5~45% Co. 残御Feの組成は、最大エネルギー稍(BII)max≥10 MO Oc 及び没脅避策密度の温度係数≤0.1%/C を示し、好ましい範囲であり、最大エネルギー稍(BII)max は最高33 MO Oe 以上に選する。

先に出願したFe·B·R采永久磁石は、磁気器 方性機結体として得られるが、本発明のFe·Co· B·R系永久磁石も同様な焼結体として得られる 即ち、合金を溶解、僻造し、納液合金を初末化し た後磁界中にて成形し焼結することにより永久磁 石が得られる。

本発明のCo然加Fe·B·R磁石はCoを含有しないFe·B·R三元端随石と比較して良好な隔度特性を示し、Brはほぼ問程度、illeは回等攻いは少し低いがCo能加により角形性が改善されるため。(BH) max は同等か或いはそれ以上である。

又、Co は Fe に 比べて 耐食性を 有するので、Fc B・ B 合金に Co を添加することにより耐食性を付 与することも 可能となる。

以下本名明を異施例に従つて説明する。但し、

により、次のようにして、キュリー点を測定した。すなわち、試料には10KUcの磁場を印加し、25℃~600℃までの温度範囲でイエIの温度変化を測定し、イエIが経費0になる温度をキュリー点Tcとした。

上記の系でドeに対する Co 放換前の 増大に併い Tcは急速に増大し Coが 3 0 多以上では Tcは 6.00 で 1 使用した測定器の測定限界 Me 度) 以上に 登 する。

- 一般に永久磁石材料において、Tcの増大は磁気特性の温度変化の減少のための最も重要な収 因とされている。この点の確認のため、Tc調定 用試料と同じ工程により第1級の永久磁石以料 を作製して、Brの温度特性を測定した。
- (5) Brの温度変化は次のようにして測定した。すなわち25℃、60℃、100℃の名割度で用トレーサにより磁化曲線を測定し、25~60℃と60~100℃における月の温度変化を平均した。

各類 Fe・B・B系がよび Fe・Co・B・R系統行の Brの臨政係改ならびに25 でにかける強化曲線の測定結果を第1次に示す。

第1表から、Fo、H、H 磁石に Coを含有することにより、Brの調度変化が改善されることは明らかである。

第1次には各試料の製品における強気特性も併記した。大部分の組成で、保確力iHcは Co 函像により低下するが、減磁曲線の角形性の両上により、(BH) max は上昇する。しかし、Co 微換量が多くなるとiHcの低下が苦しく、永久磁石材料としてiHc> 1 KUcを得るために、Co 流は5 0 ま以下とする。

Bの下限、上限、ルの下限について既述の理由が第1表から確められる。

第1段には、ルとしてNd、Pr、終の主として 軽希生期を用いたものを多数器けてあるが、失々 話い磁気特性を示し、PcのCoによる環境によつ てさらに磁度特性が改善されている。ルとしては、 2 個以上の希土湖元級の社合物も有用であること が判るが表の試料加15は希土額元器が進希土類 の社合物であるため、(BH) max は多少低い。

次に下cの一部をCoて超換した下c・Co・B・R系 塘結磁石の代表例として57Fe・20Co・8B・15 Ndの重温における強化曲線を第2図に示す。初磁 化曲線1は低磁外で急峻に立上がり、飽和に強す る。破磁測線は複めて角形性が高く、本磁石は共央 型的な高性能異方性磁石であることを示している。 初磁化曲線1の形は、本磁石の保磁力が反極磁区 の核発生によつて決定される。いわゆるニュクリ エーション型永久磁石であることを示す。なお、 第1数に示す、比較例を除く他の試料はいずれも、 第2図と何級な磁化曲線を示した。

以上超速の過り、本発明のFe·Co·B·凡系永久磁石は、Rとして経常土類、特に各種の服务土

第 1 表

							
No.	原子百分串组成(多)	日の間の		Br (KG)	(MII) oon x (MCO e)		
C1	Fe - 2 li - 1 5 Nd	0.14	1.0	9.6	1.0		
C2	Fe-8 D - 1 5 Nd	0.14	7.3	12.1	32.1		
C3	Fe-1713-15Nd	0.15	7.6	8.7	17.6		
C4	Pe-17H-30Nd	0 . 1.6	14.8	1.5	4.2		
C5	Fc-20Co-15Nd	1 =.	U	U	O		
C ₆	Pe-10Co-19B-5Pr	_	U	U	O		
C7	Fc-60Co-8B-15Nd	0.05	0.8	8.2	3.5		
н	Pe-10Co-8B-15Nd	0.09	5.2	1.2.0	33.0		
9	Fe-20Co-8B-15Nd	0.07	8.8	12.0	33: 1		
10	Pe-30Co-8B-15Nd	0.06	1.5	12.0	21.2		
11	Fc-40Co-8B-15Nd	0.06	3.1	11.8	17.5		
12	Fe-50Co-8B-15Nd	0.06	1.5	8.7	7.7		
13	Fe-15Co-17B-15Nd	0 - 1 0	7.4	8.9	18.2		
14	Pc-30Co-17U-15Nd	0.08	6.3	8.6	16.5		
15	Fe-20Co-8B-10Tb3Ce	0.08	6.1	6.3	8.8		
16	Fe-20Co-12B-14Pr	U.U7	7.2	10.5	25.0		
17	Fc-15Co-17U-8Nd5Pr	0.08	7.4	8.3	35.7		
18	Fe-20Co-11B-7Sm9Pr	U - 07	6.5	9.6	17.5		
19	Fe-10Co-15U-8Nd7Y	009	G. O	7.5	11.0		
20	Fc-10Co-14U-7Nd 3Pr5La	0.09	6.8	7. B	14.2		
21	Fc-30Co-17H-28Nd	0.09	12.2	4.6	4.7		

(符号じは比較例を示す)

別・直希土類の混合物、例えばミッシュメタルやシシムのように安価な凡原料を用いて高い磁気降性が得られ、かつ Coの含有なも選取百分率で45 を以下(原子をで50を以下)で十分であり、Sin Co 来磁石が50~65 重複多の Co を含有するのと比較すれば、Co を節約可能であり、温度時性はFe・B・凡系磁石に比べて顕著に改裕できた。

上配 Fe·Co·B·R系永久磁石は Fe^{Co}D , LO 极か、工薬的製造上不可避な不納物の存在を許答できるが、さらに以下の展開も可能であり、一般 光用性を高めることができる。即ち、Bの一部を C ,N , P , Si 等により破換することも可能であり、製造性改善,低価格化が可能となる。

さらに本発明の磁石にAL, Ti. V, Cr, Min, Cu, Zn. Zr. Nb, Mo, Ta, W. Sn, Bi, Sb の 1 街以上を添加することにより、高保磁力化が可能となり、 また、Ni 添加により、耐食性改強も可能となる。

以上、本発明は Pe·Co·B·凡系永久磁石で形 独留磁化・高保磁力。高エネルギー税を行し、か つ、残留磁化の温度特性のすぐれた磁気異方性係

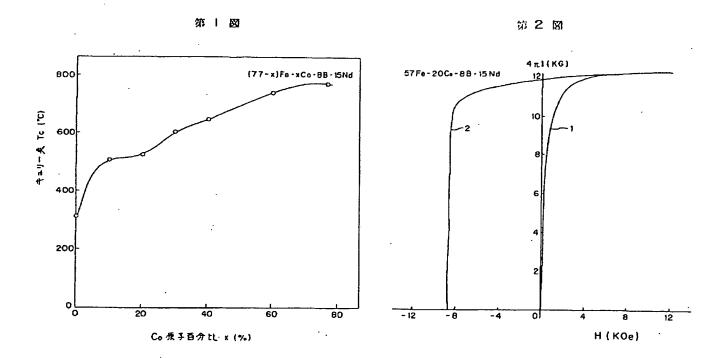
特開昭59-64733(5)

結体水久磁石を契現したもので、工業的にきわめ て高い価値をもつものである。

4. 図面の簡単な説明

第1個性、本発明の一実施例についてキュリー 点と Co 強との選係を示すクラフ(但し機軸×は Co の原子百分比)、

第2回は、他の一契施例の記録における磁化曲線を示す(初磁化曲線 1、被磁曲線 2、縦軸は磁化・ボール(KO)、横軸は磁界 1(KOc))。



特開昭59- 64733(日)

手級 福 近 肖 (自発)

阅和58年10月28日

特許庁長官 若杉 和夫 段

1 事件の収示。

昭和57年特許顯第166663号 (昭和57年9月27日 出願)

2 発明の名称

泳 久 殴 石

3 補圧をする者

事件との関係 特計出願人氏名 住友特殊金属株式会社

4 化 邓 入

化所

〒1·6. 東京 福港区 海新 四 1·丁 月 1 2 第 6 号 訂士アネックスピル4階電話(03)598-0295。

氏名

(8081) 弁理士加 膜 奶 道

5 補正命令のほ付

H se

6 補正により増加する発明の数 なし

7 補正の対象

明御費の発明の詳細な説明、図面の簡単な説明の欄ならび に図前の第3個、第4図及び第5図

8 補正の内容

別紙の通り

- 58.10.28
- 10) 阿贝2 3 行「及び残弱破壊密度の温度係 数≤0.1%/℃」を削除する。
- 11) 何以 5 行末尾に次文を加入する。「Coは 5 %以上でBrの構度係数約0.1%/で以下を示 し、2 5 %以下で他の磁気特性を実質的におう ことなくTc増大に寄与する。」
- 12) 阿贝9行「转遊し」を「沿翔(例えば特
- 造)し」とし、同行「鋳造合金」を「生成合金」にお出する。
- 13) 同質 L 3 行「三元素」を「三元素」に訂正する。
- 14) 第9頁13行来尾に「なお純度は頂張%で 派す。」を通加する。
- 15) 別12頁形1次の No.18の組成中「75 四9 P r J を「35 m l 3 P r J に訂正する。
- 11(6) 第13頁15桁「ニュクリ」を「ニューク リ」に訂正する。
 - 17) 節13頁18行末尾に次文を挿入する。

- 1. 明細部の発明の辞組な説明の間を次の通り油近する。
 - 1) 明細書第4段9行、「成る」を「本質上成る」に訂正する。
 - 5 貞 1 8 行「わずか」の次に「(例えば 0.1%~1%)」を挿入する。
 - 3) 現6頁6行「>」を「≥」に訂正する。
 - 4) 同項12行「(第2衆参照)」を削除する。
 - 5) 別7頁2行、「をもって足り、」を「が好 ましく、」に再正する。
 - E) 邓7以6行、「用いることができる。」を 「用いることができ、Sm、Y、La、Ce、 Gd毎は他のR、特にNd、Pr毎との混合物 として用いることができる。」に打正する。

「前述の工程と関係にして製造した試料により、Fe-10Co-8B-×Ndの系において×を0~40に変化させてNd駅とBr、iHcとの関係を調べた。その結果を遊る図に示す。さらに、Fe-10Co-×B-15Ndの系において×を0~35に変化させてB量とBr、iHcとの関係を調べ、その結果を羽4図に示す。」

- 18) 第13頁16行、「ことを示す。」を「ことが推毀される。」に訂正する。
- 19) 第13頁18行と19行の間に次文を挿入する。

「さらに、阿様の工程により、Fe-Co-B-R四娘分系において、一例としてFe-5Co-B-Nd系についてFe.Co,Nd 三成分を変化させて磁気特性を調べ、その結果 を(BH)maxについて第5例に示す。

20) 第14頁9行、「工業的」をCu、C、 S、P、Ca、Mg、O. Si、Al等日本 的」に訂正する。

特開昭59-64733(フ)

21) 阿頂19行、「できるが、」を「できる。これらの不能物は、原料或いは製造工程から混入することが多く、磁石合金中にCu、P芬3.5 %以下、C、Ca、MB名4%以下、S 2.0 %以下、O 2%以下、S i 5%以下、A 1約1%以下合計5%以下は許锌され、」に訂正し、「さらに以下の展開も可能であり、」を削除する。

- 22) 同選」1 打-1 3 行「即ち、....となる。」を削除する。
- 2.4)何以15行「Zn」を「Ge、Hf」に訂 正する。

11 . 明細線の図面の簡単な説明の欄を次の通り補 正する。

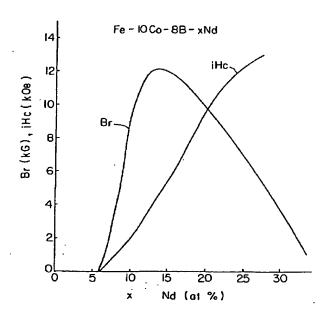
明 期 的 印 1 5 以 9 行 末 尾 に 次 文 を 挿 入 す る 。 「 第 3 図 は F e - 1 0 C o - 8 B - x N d 系 に おいて、 N d 様 (機 軸 原 子 %) と し i H c 、 B r の 関 係 を 示 す グ ラ フ . 第4 図は、Fe-10 Co-×B-15 N d系において、B 型 (横軸原子%) とi H c、Brの関係を示すグラフ、

射 5 例は、Fe - 5 Co - B - N d 系において、Fe - B - R 三 成分の組成と(B H)m a > x の関係を示す三成分系グイヤグラムを、失々示す。」

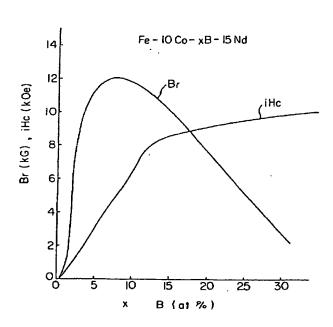
四、図面の別殊(新)第3図、第4図、第5図を 追加する。

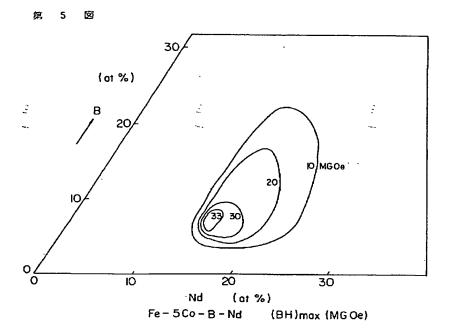
LL LL

第 3 図



£4 4 5x1





特許法第17条の2の規定による補正の掲載

昭和 57 年特許願第 166663 号(特開 昭 59-64733 号, 昭和 59年 4月 11日発行 公開特許公報 59-648 号掲載)については特許法第17条の2の規定による補正があったので下記のとおり掲載する。 3 (4)

Int.Cl24	識別記号	庁内整理番号
C22C 19/07		7730-4K 7147-4K
HO1F 1/04		7 3 5 4 - 5 B

明 柳 智 (全文訂正)

1. 発明の名称

永久磁石

- 2. 特許請求の範囲
- (1) 原子百分比で、希土類元素(R)としてNd、Pr、Dy、Bo、Tbのうち少なくとも一般8~30%、B2~28%及び發郵実質的にFeからなるFe-B-R系磁気異方性旋結体永久磁石において、前記Feの一部を全組成に対して50%以下(0%を除く)のCoで置換したことを特徴とする永久磁石。
- (2) 原子百分比で、前記沿土類元素(R)12~20% (但し前記沿土類元素(R)の50%以上はNdとPrの上程又は2 限)、B4~24%及び残部実質的にFeからなり、前記Feの一部を全組成に対して45%以下のCoで選換したことを特徴とする特許が水の範囲第1項記載の永久磁石。
- (3) 原子百分比で、 新土 類元常 (R) としてNd. Pr. Dy. Ho. Tbのうち少なくとも

手統相正都

昭和62年12月14日

特許庁長官 小川 邦夫 战

1 単件の表示

昭和57年特許顯第168863号 (昭和57年9月27日出願)

2 発明の名称

永久磁石

3 施正をする岩

名称

事件との関係 特許出版人

住友特殊金属株式会社

4 代理人

住所 〒105 東京都港区西新橋 1 丁目12番 8 号

西新担中ビル5階 帯話(03)508-0295

氏名 (8081)弁理士 加 遊 朝



- 5 庙正により増加する発明の数
- 6 植正の対象
- (1) 明知君全文
- (2) 図面(第3~5図)
- 7 補正の内容
 - (1) 明如告全文を添付の全文訂正明知書に納正する。
 - (2) 第3~5図を、夫々、添附の打正図面に補正する (各は料の「Fe風」を明確にしたものであり、 寒体に変更はない)

方式 (富

一般としま、Ce、Pm、Sm、Eu、Gd、Er、Tm、Yb、Lu、Yのうち少なくとも一種の合計 8~30%、B2~28%及び疑部與質的にFeからなるFe-B-R系磁気與方性旋結体水久磁石において、前記Feの一部を全組成に対して50%以下(0%を除く)のCoで置換したことを特徴とする永久磁石。

(4) 原子百分比で、前記希土類元米(R) 12~20% (但し前記希土類元米(R)の50%以上はNdとPrの1種又は2種)、B4~24%及び發部尖質的にFeからなり、前記Feの一部を全組成に対して45%以下のCoで電換したことを特徴とする特許訪水の範囲第3項記載の永久磁石。

3. 発明の詳細な説明

本免明は、一般家庭の各種電気製品から、大型コンピュークの周辺端末機まで、幅広い分野で使われるきわめて重要な電気・電子材料の一つである永久進石の改良に保り、特に C o 添加 F e - B - R 系永久进石に関する。

近年の電気、電子機器の小型化、高効率化の要

水にともない、永久磁石はますます高性能化が水 められるようになった。

現在の代表的な永久磁石はアルニコ、ハードフェライト及び沿土類コパルト磁石である。最近のコパルトの原料市協の不安定化にともない。コパルトを20~10近型%含むアルニコ磁石の需要は減り、終の酸化物を主成分とする安価なハーなのでは減り、終の酸化物を主成分とする安価なハーなのでは、一方、沿土類コパルト磁石はコパルトを50~85重型%も含むうえ、沿土類鉱石中にあまり含まれていないSmを使用するため大変高価であるが、他の磁石に比べて、磁気特性が格段に高いため、主として小型で、付加価値の高い磁気回路に多く使われるようになった。

新土頭コバルト磁石はRCos, R2 Co17 (RはSm. Ceを中心とする新土類元素)にて示される2元系化合物をベースとする永久磁石であり、Coの一郎を少量のCu, Feの他2r. Ti, V, Hf等の連移金属元素にて置換することによって強気特性の向上が図られてきたもので

クロートは軽布上調飲合金は低コスト永久磁石の魅力的な候補として長い間考えられてきたが、これら合金を初末冶金法によって磁気的に硬化する試みは成功しなかったことを報告するとともに、PrーFe及びNdーFe合金が溶験紡糸(超急冷)によって磁気的に硬化され得ることを見い出したと報告している(J. J. Croat: J. Appl. Phys. 53 (4), Aprll 1982, 3161 頁)。

指土類を用いた 磁石がもっと広い分野で安価に、かつ多量に使われるようになるためには、高価なコパルトを含まず、かつ和土類金属として、 鉱石中に多量に含まれている軽滑土剤を主成分と することが必要とされよう。

一方既述のようにR-FeないしR-Fe-B合金を避性材料として有用化するためには、スパッタ消暖化又は超急冷ないしアモルファス化が不可欠であるとされている。

しかし、これらのスパック薄膜又は超急冷リポンからは任意の形状・寸法を有するパルク状の奥 用永久囲石を得ることができなかった。これまで ある。

他方近時、コパルトを含まない磁性材料として FeとR(以下本発明においてRは希土類元常を 示す符号として用いる)を主成分とするスパッタ 砂膜又は超低冷リポンの磁性材料が提案されてい る。例えば、クラークによるスパッタした荷藤丁 モルファスTbFe¸, Dy.Fe¸, SmFe¸ 合金の磁気特性が報告されている(A. E. Clark: Appl. Phys. Lott. vol. 23 No. 11 1 December 1978 642 ~ 644頁)。また超急冷リポンの磁性 材料としてクロートによるPェFe来合金(). J. Croat: Appl. Phys. Lett. 37 (12), 15 December 19801098~1098頁) があり、さらに クーン等による (Fe_{0.82}B_{0.18}) _{0.9} Tb_{0.05} La_{0.05}合会(N. C. Koon 他: Appl. Phys. 1.8tt. 39 (18). 15 November 1981. 840 \sim 842 頁), カパコフ弥による(Fe_{0.8} B_{0.2}) _{1-x} Pr_x (x = 0 ~ 0.3原子比) 合金(i. Kabakoff 他: J. Appl. Phys. 53 (3), Harch 1882. 2255~2257頁) 符が報告されている。さらに前記

に報告されたFe-B-R系リボンの磁化曲線は 角形性が懸く、従来慣用の磁石に対抗できる実用 水久磁石とはみなされえない。また、上記スパッ 夕前膜及び超急冷リボンは、いずれも本質上等方 性であり、これらから磁気異方性の実用永久磁石 を得ることは、事実上不可能であった。

本発明は、このような要請に応えるべき新規な実用高性能永久磁石を提供することを基本目的とする。特に、本発明は、室温以上で良好な磁気気管性を育し、任意の形状・実用寸法に成形でき、磁化曲線の角形性が高く、さらに磁気変方性を育する実用永久磁石であって、しかもRとして毀顔的に豊富な経輸土類元素を育効に使用できるものを得ることを目的とする。

このような永久磁石として、本発明者は、先に、Nd、Prを中心とする特定の希土頭元光とFeとBとを特定比をもって必須とし、かつ研究 異方性旋結体である、全く新しい経期の実用高性 能永久磁石を開発し、本願と同一出願人により 出版した(特願明 57-145072)。このFe-B

上述のFe-B-R系磁気異方性焼結永久磁石は必ずしもCoを含む必要がなく、またRとしては好適な実施態様として資飯的に豊富なNd.Prを主体とする軽希土類を用いることができ、必ずしもSmを必要とせず或いはSmを主体とする必要もないので原料が安価であり、きわめて有用である。しかも、磁気特性はハードフェライト磁石以上の特性を有し(保磁力(IIc≥ 1 k0e 、残留磁束密度Br≥ 4 kG、最大エネルギー数(BH) max

することが適当であることが判明した。

この機に永久超石にとって磁気特性の温度依存性が大きい、即ちキュリー点が低いことはその使用範囲が狭められることとなり、 Fe - B - R 系永久避石を広範囲の用途に使用するためにはキュリー点を上昇せしめ、温度特性を改善することが必要であった。

本犯明は、かかるFe-B-R来破石において、その温度特性を改良することを併せて目的とする。

本売明省は、各種の実験及び検討の結果、FeのCoによる置換がFe-B-R系永久礁石の温度特性の改善に有効であることを見出した。 即ち、本允明の永久礁石は次の通りである。

本願の第1発明:原子百分比で、希土類元素(R)としてNd、Pr、Dy、Ho、Tbのうち少なくとも一種8~30%、B2~28%及び鉄部実質的にFeからなるFe-B-R系磁気與方性機構体永久出石において、前記Feの一部を全組成に対して50%以下(0%を除く)のCoで顕換

≥ 4 MCOe)特に好ましい租成範囲においては希 土類コパルト磁石と同等以上の極めて高いエネル ギー樹を示すことができる。

以上の通りこのFe-B-R系永久磁石は磁気 異方性に基づく高磁気特性、任意成形性、資源的 により豊富な材料を用いることができる等の点 で高いコストパフォーマンスを有し、R-Co系 **磁石にも代わり得る工業上極めて有用なものであ** るが、一方、このFe-B-R系永久磁石のキュ リー点 (温度) は、特顧昭57-145072に開示の 通り一般に 300℃前後、最高 370℃である。この キュリー点は、従来のアルニコ系ないしR-Co 系の永久磁石の約 800℃のキュリー点と比べてか なり低いものである。従って、Fe-B-R系永 久趾石は、 従来のアルニコ系やR-Co系趾石に 比して磁気特性の温度依存性が大であり、高温に おいては磁気特性の低下が生ずる。本発明省の研 究の結果によれば、Fe-B-R系換結曲石は約 100℃以上の温度で使用するとその温度特性が劣 化するため、約70℃以下の通常の温度範囲で使用

したことを特徴とする永久磁石。

本版の第2発明:原子百分比で、希土類元素(R)としてNd、Pr、Dy、Ho、Tbのうち少なくとも一種とLa、Ce、Pm、Sm、Eu、Gd、Er、Tm、Yb、Lu、Yのうち少なくとも一種の合計8~30%、B2~28%及び段節実質的にFeからなるFe-B-R系磁気異方性境結体永久磁石において、同記Feの一部を全組成に対して50%以下(0%を除く)のCoで置換したことを特徴とする永久磁石。

一般に、Fe合金へのCoの添加の版、Co添加のの増大に従いキュリー点(Tc)が上昇するものと下降するものと両方が認められている。そのため、FeをCoで屋換することは、一般的には複雑な結果を生来し、その結果の予測は困難である。例えば、RFea 化合物のFeをCoで躍換して行くと、Co 量の増大に伴いTcはまず上昇するが、Feを1/2 置換したR(Fea、Coo.5)a 付近で極大に達し、モ

の後低下してしまう。またFe₂ B合金の場合には、FeのCoによる医換によりTcは単型に低下する。

Fe-B-R系におけるFeのCoによる置換 においては、第1図に示す通り、Co国換量の 増大に伴いfeは当初急速に増大し、以後徐々に増 大するこどが明らかとなった。この Fe - B - R 来合金においては、 Rの種類によらず同様な 傾向が確認される。Coの置換型はわずか(例え ば 0.1~1 原子%) でもTc増大に有効であり、 **節1図として附示する系(77-x) Fe-x Co** - 8 B - 15N dにおいて明らかな通り、xの調整 により 400~ 800℃の任意のTcをもつ合金が得ら れる。かくて本允明は、新規なFe-B-R化合 物をベースとしたFe-B-R系磁気異方性療材。 水久低石のFeの一部をCoで設換することに より合金租政中にCoを50%以下含有せしめ、 (Fe, Co) - B - R 化合物をペースとした Fe-Co-B-R系永久磁石を提供するもので ある。

本免明において必須元素のうちB、Rの含有益は基本的にFe-B-R系永久磁石(Coを含まない系)の場合と同様である。即ち(以下%は合金中,以子百分率を示す)、保磁力 Hc ≥ 1 k0e を満たすためにBは2%以上とし、ハードフェライトの残留磁果密度 Br 約4 kG以上とするためにBは28%以下とする。Rは、保磁力 1 k0e 以上とするために8 %以上必要であり、また燃え易く工業的取扱、製造上の困難のため(かつまた高価であるため)、30%以下とする。

本発明の永久雄石に用いる部土類元常RはYを包含し、軽布土類及び重部土類を包含する沿土類元常であり、そのうち所定の一程以上を用いる。即ちこのRとしては、Nd、Pr、La、Ce、Tb、Dy、Ho、Er、Eu、Sm、Gd、Pm、Tm、Yb、Lu及びYが包含される。Rとしては、Nd、Prを主体とする軽滑土類(特にNd、Pr)が好ましい。過倒Rのうち所定のもの一種をもって足りる(Nd、Pr、Dy、Ho、Tb等)が、La、Ce、Pm、Sm、

本館明によれば、Coを含有することにより Fe-B-R系水久磁石の温度特性を実質的に従来のアルニコ磁石、R-Co系磁石と同等程度に改善する上、さらにその他の利点を保持する。

即ち、特にお土類元祭Rとして資産的に豊富なNdやPrなどの程お土類を用いた場合、従来のR-Co系遊石と比較すると、資源的、価格的いずれの点においても有利であり、磁気特性の上からもさらに優れたものが得られる。

また、本発明のCo添加Fe-B-R系永久磁石はCoを含有しないFe-B-R系永久磁石と比較してBrはほぼ同程度、 illcは同等成 いは少し低いがCo添加により角形性が改善されるため、かなりの範囲で(BH) sax は同等か成いはそれ以上とすることが可能である。 さらに、CoはFeに比べて耐食性を育するので、Fe-B-R永久磁石と比較してCoを添加することにより耐食性を付与することも可能となる。

かくて、本発明は工業上極めて有用な新規な実 用高性能永久磁石を提供できる。

Eu. Cd. Er, Tm, Yb. Lu, Y等は他のR. 特にNd, Pr. Dy, Ho. Tb (一程以上) との混合物として用いることがアタル、 Sp用上は二種以上の混合物(ミッシュメタル、 Cd. Yは単独では INcが低いため好しかましてができる。 Sm, La, Er, Tm, Ce, Cd, Yは単独では INcが低いため好した。なけれてきる。 Cd, Yは単独では INcが低いないに対したができる。 Cd, Yは単独では INcが低いために対したができる。 ない、 Cd, Eu, Pm, Yb, Luは数量に対したができる。 なってこれらのRはないにはいることができる。 なお、このRはないに対して対していることができる。 なお、このRはないのできる。 なお、このRはないのできる。 なお、このRはないのできる。 なお、このRはないのできる。 なお、このRはないのできる。 なお、このRはないはない。

B (ホウ米) としては、純ポロン又はフェロポロンを用いることができ、不純物として A 1, S 1, C 等を含むものも用いることができる。

技部は実質的にFeとCoからなり、本発明の 特徴とするCoの置換量は、後述する磁気特性等 の要求に応じて適宜選択することが望ましい。

本発明永久磁石はFe、Co、B、Rの外、C、S、P、Ca、Mg、O、S1、A2等工類的に製造上不可避な不能物の存在を許容できる。これらの不能物は、原料或いは製造工程から混入することが多く、合計は5%以下とすることが好ましい。又、A2、T1、V、Cr、Mn、2n、2r、Nb、Mo、Ta、W、Sn、Bi、Sbの一種以上を添加することにより高保磁力化が可能となり、又Ni添加により、耐食性改善も可能となる。

本苑明のFe-Co-B-R系永久磁石は、 既述のR、即ちNd、Pr、Dy、Ho、Tbの うち少なくとも一種、又はこれらNd、Pr、 Dy、Ho、Tbのうち少なくとも一種とLa。 Ce、Pm、Sm、Eu、Gd、Er、Tm、 Yb、Lu、Yのうち少なくとも一種の合計8~ 30%、2~28%B、Co50%以下、鉄部Feにお いて保磁力 1Hc≥ 1 kOc 、鉄留磁束密度Br≥ 4 kG の磁気特性を示し、最大エネルギー数(BH) max は

この実施例は水炉明をこれらに限定するものではない。

第1図に代表例として77Fe-8B-15Ndの Feの一部をCo(x)で置換した系、(77-x) Fe-xCo-8B-15Ndのxを0~77に変化 させた場合のキュリー点Tcの変化を示す。この試 料は次の工程により作製した。

(1) 合金を海周波海解し水冷銅鋳型に鋳造。

- (2) 物件 スタンプミルにより35メッシュスルーまで抵約のし、次いでポールミルにより3時間 微粉砕(3~10m);
- (3) 田界 (10k0o) 中配向, 成形 (1.5t/cdにて加圧);
- (4) 娘精 1000~1200℃ 1 時間 A r 中, 旋 精 後 放

ハードフェライト(~ 4 NGOc程度)と同等以上となる。

きらに、RとしてNd、PrをRの主成分(即ち全R中Nd、Prの1福以上が50%以上)とし、12~20%R. 4~24%B. 45%以下Co, 残師Feの組成は、最大エネルギー粒(BH)sax ≥10 MCOeを示し、特にCoが35%以下では最大エネルギー粒(BH)sax は20MCOe以上となり、最高33MCOe以上に達する。又Coは5%未満でもTc増大に寄与し、特に5%以上ではBrの温度保敷約 8.1%/で以下を示し、25%以下で他の磁気特性を実質的に扱うことなくTc増大に寄与する。

本発明のFe-Co-B-R 系永久 磁石 も。 先に出願したFe-B-R 系永久 磁石 と同様 な磁 気異方性 旋結体として 得られる。 典型的には、 合 金を溶成、 冷却 (例えば 鋳造) し、 生成合金を 粉 米化した後、 磁界中に て成形し旋結することによ り本発明の永久 磁石を 得ることができる。

(実施例)

以下水発明を実施例に従って説明する。但し、

冷。

上記の系でFeに対するCo置換益の増大に 作いTcは急速に増大し、Coが30%以上ではTcは 600で以上に違する。

一般に永久砥石材料において、Tcの増大は砥気特性の温度変化の減少のための最も重要な要因とされている。この点の確認のため、Tc測定用は料と同じ工程により第1数の永久砥石は料を作製して、Brの温度特性を次のように測定した。即ち25℃、60℃、100℃の各温度でBIIトレーサにより磁化曲線を測定し、25~60℃と60~100℃におけるBrの温度変化を平均した。各種Fe-B-R系及びFe-Co-B-R系砥石のBr温度係数の制定結果を第1表に示す。

第 1 表から、Fe-B-R系磁石にCoを含有することにより、Brの温皮変化が改善されることは切らかである。

第 1 表には各試料の室辺における磁気特性も併記した。大部分の組成で、保磁力 iHcは C o 置換により低下するが、減胜曲線の角形性の向上により、 (BH) max は上昇する。しかし、 C o 置換量が多くなると 1Bcの低下が老しく、永久磁石材料として iHc≥ 1 k0o を得るために、 C o 量は50%以下とする。

Bの下限、上限、Rの下限について既述の限定 理由が第1表から(さらに第3、4図から)確か められる。

(以下余白)

												-							- 1		Т			\neg		\neg		
	(BII) RAX		(Sego	÷	32.1	17.6	4.2	0	0	3.5	33.0	33.1	24.2	17.5	<u></u>	18.2	16.5	œ.	22.0	15.7	2:	=	14.2	1.1	20.1	19.6	33.	
	<u>ت</u>		9	9.6	12.1	8.7	4.5	-	0	8.2	12.0	12.0	12.0	11.8	8.1	8. 9.	æ 9.	6.3	10.5	8.3	9.8	5	7.8	4.6	<u>:</u>	10.3	12.1	
	읦		(80%)	1.0	7.3	7.6	14.8	-	0	9.8	5.2	8.8	4.5	3.1	1.5	7.4	6.3	6.1	7.2	7.4	6.5	0. 0.	6.8	12.2	7.8	1.2	8.6	
	Brの温度	新	(X/C)	0.14	91.0	0.15	0.16	1	ı	0.05	0.03	0.07	0.08	90.0	0.06	01.0	80.0	80.0	0.07	0.08	0.01	0.09	0.09	0.09	0.10	6.03	0.10	
3 ₹		_																					E a		1			1
																					L		r - 5		۸ ا	0		1
坛	ļ	36																3 C e		5 P r		7.	3 P		0.9	H 9		3
		5							۱.	~	ъ	0	70	٣	20	2	2	٥	-	- P N 8	Sm-13P	-PN8	PNZ	2	5	107	7	
		4 41						_	SP	PNSI-	- 15N	- 15N d	-ISN d	-15N d	PNSI-	NSI-	PNSI	들	-14P	18	13,	8	7	82	- 12N d	-12Nd	8 -15N d	
		原子百分半組成(%)		9	2	2	P NOE	-15N d	98	8 B-	8 B	8 8	m	8 8	B	-178	118	88	12B		E E	-15B	148	-17B-28Nd	-10B	-10B	∞	,
		原子!		- 15N	ZS.	PNSI	1.1	1	-10Co-19B	10	[1	1	1	10	10	10	1 1	10	11	-15Co-17B	1	0	1	10	0		- 0	1
				2 B	m	18	17B	20C o	2	60Co	1000	200	3000	S	.50C	-1500	300	-20Co	-20Co	155	-20Co	-10C	- 10Co	-30C o	-10C	-10Co	- S C	
				9		به (د		10 E	به ا	ا م	F e -					به ا		به ا		F. e.	9	ته		نه ا	9 12	<u>ج</u> ا	e E	
		۶	!	5	+-	4-	ਹ	23	٤	Ε	000	G.	=	<u> </u>	: =	=	=	. 2	=	=	<u>~</u>	5	2	7	22	23	24	

(符号Cは比較例を示す

第1表には、RとしてNd、Pr等の主として軽和土類を用いたものを多数掲げてあるが、夫々高い磁気特性を示し、FeのCoによる置換によってさらに温度特性が改善されている。Rとしては、2種以上の希土類元素の混合物も有用であることが料る。

型に得られた旋結体(如 1 表 M C 2 . M 8 . M 24)を80で、相対湿度90%の恒湿恒湿槽に 200時間置き、酸化による単位変化を測定した処、本発明に係る試料(M 8 . M 24)はC o を含まない試料(M C 2)に比べて重点増加の割合が若しく低く、又C o の添加量に応じてその効果が顕著に認められた。

次にFeの一部をCoで図換したFe-Co-B-R系焼精磁石の代表例として57Fe-20Co-8B-15Ndの富温における磁化曲線を第2図に示す。初磁化曲線1は低磁界で急峻に立上がり、飽和に達する。減磁曲線は極めて角形性が高く、本発明磁石は典型的な高性能異方性磁石であることを示している。初磁化曲線1の形から進象

として軽が土類、特にN d . P r を中心とする軽 の上類、 質が土類の混合物、 例えばミッシュメタ ルやジジムのように安価な R 原料を用いて高百分の 気特性が得られ、かつ C o の含育量も重量の分で で 45%以下 (原子%で 50%以下) で十分であり、 Sm C o 系 強石が S m を必須とし 50~ 85 重量% の C o を含有するのと比較すれば、 S m を必須とせ ずかつ C o を節約可能であり、 温度特性は F e ー B - R 系 磁石に比べて顕者に改造できた。

 すると、本苑明磁石はその保健力が反転磁区の 核発生によって決定される、いわゆるニュークリ エーション型永久磁石である。なお、第1姿に示 す、他の試料(比較例を除く)はいずれも、第2 図と同級な磁化曲線を示した。

可述の工程と開談にして製造したは料により、(82-x) Fe-10 Co-8 B-x N dの系においてxを0~40に変化させてN d なとBr. illcとの関係を調べた。その結果を第 3 図に示す。さらに、(75-x) Fe-10 Co-x B-15 N dの系においてxを0~35に変化させてB 量とBr. illeとの関係を調べ、その結果を第 4 図に示す。第 3 図、第 4 図からも本発明の R. B の数値限定の関係的のよう。

さらに、同様の工程により、Fe-Co-B-R 四成分系において、一例として(95-×-y)Fe-5Co-yB-×Ndの系についてFe.B、Nd三成分を変化させて磁気特性を調べ、その結果を(BH) max について第5図に示す。

本範明のFe-Co-B-R杂永久磁石は, R

N d . P r 等の軽希上類を充土類の中心として 別いることができることにより、質額、価格、磁 気特性いずれの点においても優れた永久磁石であ り、工業利用性の極めて高いものである。また F e - B - R 系磁石と対比してみると、C o の 存により災用上充分高いキュリー点を備え、応用 範囲を拡げ災用的価値を高めている。

4. 図面の簡単な説明

第 1 図は、 (71-x) Fe-x Co-8 B-15N d 系において、 Co 型 (植軸原子%) とキュリー点との関係を示すグラフ、

第2図は、57Fe-20Co-8B-15Ndの磁 石の室器における磁化曲線(初磁化曲線1、磁磁 曲線2、縦軸は磁化4πI(kG)、機軸は磁界H (kOc))。

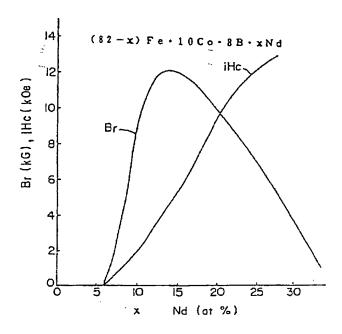
第 3 図は、(82-x) Fe-10Co-8 B-x Nd系において、Nd 届(衛軸原子%)とilic、Brとの関係を示すグラフ。

第 4 図は、(75 − x) F e − 10 C o − x B − 15 N d 系において、B 扉(微軸原子%)と IHc. Brとの関係を示すグラフ、及び

第 5 図は、Fe - 5 Co - B - N d 系において、 (95 - x - y) Fe - y B - x R 三成分の組成と (BII) max との関係を示す三成分系ダイヤフラム、を夫々示す。

出版人 住女特殊金属株式会社

第 3 図



第 4 図

